

JP09165734  
\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

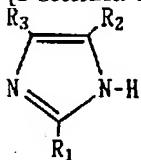
## CLAIMS

### [Claim(s)]

[Claim 1] The manufacturing method of N-methyl imidazole derivatives characterized by reacting by the 120-200-degree C temperature requirement in case imidazole derivatives and a dimethyl carbonate are made to react and N-methyl imidazole derivatives are manufactured.

[Claim 2] Technique according to claim 1 characterized by expressing imidazole derivatives with the following general formula (1).

### [Formula 1]



(R1, R2, and R3 mean independently a hydrogen atom, a halogen atom or aliphatic series, aroma aliphatic series, or the aromatic base mutually)

[Claim 3] Technique according to claim 1 or 2 characterized by reacting while a dimethyl carbonate is dropped under an ordinary pressure.

[Claim 4] Technique according to claim 1 to 3 characterized by reacting by the liquid phase.

[Claim 5] Technique according to claim 1 to 4 characterized by reacting the amount of a dimethyl carbonate by the 0.7 to 2 twice as many mole ratio as this to an imidazole-derivatives compound.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any  
damages caused by the use of this translation.

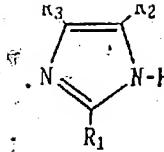
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

### [Detailed Description of the Invention]

[0001]

- [The technical field to which invention belongs] this invention relates to the manufacturing method of N-methyl imidazole derivatives.
  - [0002] Generally, imidazole derivatives are compounds very useful as resin curing agents, such as an epoxy resin and a polyurethane resin, a hardening accelerator, or various pesticides, the physic or color intermediate field.
  - [0003]
  - [Description of the Prior Art] As a manufacturing method of N-methyl imidazole derivatives, the technique to which imidazole derivatives and a methanol are made to react under acid-catalyst presence is learned. However, by this technique, in order that the temperature of at least 200 degrees C or more may use a lot of required acids, the cauterization of equipment poses a problem. Moreover, after a reaction end, in order to neutralize these acids, an alkali treatment is needed and it is operation top trouble.
    - [0004] The method of methylating imidazole derivatives by methyl halide or the dimethyl sulfate is learned as the technique of performing at on the other hand comparatively low temperature. However, the separation of that N-methyl imidazole is necessarily uncompoundable with sufficient yield from N-methyl imidazole which had to use the halide compound with troublesome handling or the strong toxic dimethyl sulfate as a raw material, and was generated reacting further, and generating the imidazolium compound which is the 4th class salt \*\*\*\*, or a product is difficult for this technique in many cases.
    - [0005] In order to solve these problems, the method of using the high dimethyl carbonate of safety as a methylation agent was developed. According to Synthesis.382 page (1986), the target N-methyl imidazole derivatives are compounded with 85 - 91% of yield by performing 100 degrees C and a 8 hour reaction for \*\*\*\*\*s and a dimethyl carbonate under potassium carbonate and crown-ether presence.
    - [0006]
  - [Problem(s) to be Solved by the Invention] However, in order to make it react with sufficient yield by this technique, as a catalyst, potassium carbonate and the expensive crown ether were indispensable, and were not suitable as a industrial manufacturing method.
    - [0007] this invention is made in view of the above-mentioned technical problem, and the purpose is offering the manufacturing method which can obtain the target N-methyl imidazole derivatives by the high yield, without using a catalyst.
    - [0008]
  - [Means for Solving the Problem] The result to which this invention persons examined the manufacturing method of N-methyl imidazole derivatives zealously, In case imidazole derivatives and a dimethyl carbonate are made to react and N-methyl imidazole derivatives are manufactured, by reacting by the 120-200-degree C temperature requirement. Without generating the imidazolium compound of the 4th class, without using a catalyst, it finds out that the specified substance can be extremely obtained by the high yield, and came to complete this invention as a new industrial manufacturing method of N-methyl imidazole derivatives.
    - [0009] That is, in case this invention makes imidazole derivatives and a dimethyl carbonate react and manufactures N-methyl imidazole derivatives, it is the manufacturing method of N-methyl imidazole derivatives characterized by reacting by the 120-200-degree C temperature requirement.
    - [0010]
  - [Embodiments of the Invention] this invention is explained in detail below.
    - [0011] In the technique of this invention, a reaction is performed by the 120-200-degree C temperature requirement. At less than 120 degrees C, since a reaction becomes very slow, it is not practical, and in the temperature exceeding 200 degrees C, disassembly of a raw material arises and the yield of N-methyl imidazole derivatives falls.
    - [0012] The raw materials used in the technique of this invention are imidazole derivatives [0013] expressed with the following general formula (1).
    - [Formula 2]



[0014] It is the dimethyl carbonate (as which R1, R2, and R3 mean independently a hydrogen atom, a halogen atom or aliphatic series, aroma aliphatic series, or the aromatic base mutually).

[0015] As imidazole derivatives expressed with the above-mentioned general formula (1) Although it does not limit especially, for example An imidazole, 2-methyl imidazole, 4-methyl imidazole, 2-ethyl imidazole, 4-ethyl imidazole 2-propyl imidazole, 2-isopropyl imidazole, 2-butyl imidazole, 2-isobutyl imidazole, 2-pentyl imidazole, 2-hexyl imidazole, 2-octyl imidazole, 2-dodecyl imidazole, 2-undecyl imidazole, 2-heptadecyl imidazole, 2-allyl-compound imidazole, 2-hydroxymethyl imidazole, 2-(beta-\*\*\*\*\*\*) ethyl imidazole, 2-benzyl imidazole, 2-phenyl imidazole, 2-cyclohexyl imidazole, 2-cyano ethyl imidazole, 4-nitroglycerine imidazole, 4-formyl imidazole, 4-cyan imidazole, 4-cyano ethyl imidazole, 4-hydroxymethyl imidazole, 4-aminoethyl imidazole, 2, 4-dimethyl imidazole, 4 5-dimethyl imidazole, 2, 4-diethyl imidazole, 4, 5-\*\*\*\*\* chill imidazole, 2, 4-diphenyl imidazole, 2, 4-dibenzyl imidazole, 2, 4-dicyclohexyl imidazole, a 2-ethyl-4-methyl imidazole, A 2-isopropyl-4-methyl imidazole, a 2-butyl-4-methyl imidazole, 2-methyl-4-phenyl imidazole, a 2-methyl-4-nitroglycerine imidazole, A 2-methyl-4-formyl imidazole, a 2-phenyl-4-formyl imidazole, A 2-methyl-5-nitroglycerine imidazole, a 2-methyl-5-formyl imidazole, A 2-phenyl-5-formyl imidazole, a 4-methyl-5-phenyl imidazole, The 4-phenyl-5-methyl imidazole benzimidazole, 2-(2 pyridyl) imidazole, A 2-phenyl-4-methyl imidazole, a 2-phenyl-4-ethyl imidazole, A 4-methyl-5-hydroxymethyl imidazole and imidazole-4-carboxylic acid, An imidazole-4-dithiocarboxylic acid, the imidazole -4, 5-dicarboxylic acid, a 2-phenyl-4-methyl-5-ethyl imidazole, a 2-propyl-4-benzyl-5-phenyl imidazole, etc. are mentioned.

[0016] As for the amount of the dimethyl carbonate used, in the technique of this invention, it is desirable to react to an imidazole-derivatives compound in the 0.7 to 2 twice as many mole ratio [ as this ] domain. Since the reaction by which the 4th class of N-methyl imidazole generated when it was not practical and 2 was exceeded, in order that unreacted imidazole derivatives might remain mostly, if it is less than 0.7 is chlorinated further to an imidazolium compound becomes easy to advance, the yield of N-methyl imidazole derivatives may fall.

[0017] In the technique of this invention, it is desirable to carry out by replacing a reactor by inert gas, for example, nitrogen gas, or argon gas in consideration of a by product and tinction prevention.

[0018] The technique of this invention is enforced by the liquid phase.

[0019] In the technique of this invention, it is desirable to perform a reaction under an ordinary pressure. When reacting under pressurization, it is difficult for the 4th class-ized reaction to advance and to obtain the purpose product with sufficient yield.

[0020] As for the technique of this invention, it is desirable to make it react, while a dimethyl carbonate is dropped. The instillation said by this invention means the thing for which a sample is supplied to a reactor using a pump, or dropping a sample on the lower part from the upper part. As for the dropped speed, it is desirable that it is made not to become often and extremely superfluous generally to put in at the speed corresponding to the amount consumed by the reaction although there is no \*\*\*\*\* by being decided with reaction temperature. If it becomes extremely superfluous, reaction temperature becomes unable to maintain more than the boiling point of a dimethyl carbonate, or a dimethyl carbonate \*\*\*\*'s besides a system. On the other hand, when a dimethyl carbonate is taught to a batch, reaction temperature cannot be kept higher than the boiling point of a dimethyl carbonate.

[0021] In the technique of this invention, even if it uses a solvent and it does not carry out it, it does not interfere. It is more desirable to use the solvent which has the boiling point of the imidazole derivatives which are raw materials, or the boiling point more than reaction temperature, although there is especially no limit if inactive [ to a reaction condition ] as a solvent. Moreover, there is especially no limit about the amount which a solvent uses.

[0022] In the technique of this invention, although it is the characteristic feature not to need a catalyst, even if it uses a catalyst, it does not interfere.

[0023]

[Example] Hereafter, although an example explains the technique of this invention, this invention is not limited to these.

[0024] After putting in and carrying out the nitrogen purge of the 2-methyl imidazole 41.1g (0.50 mols) to the three necked flask of 1200ml of examples, it heated at 160 degrees C. The reaction was continued, 49.6g (0.55 mols) of dimethyl carbonates having been dropped over 6 hours under the ordinary pressure and the nitrogen draft, and agitating to a pan after that in the place where temperature rose, for 2 hours. When it cooled to the room temperature after the reaction end and the gas chromatography analyzed, the selectivity of 94% [ of the invert ratios of 2-methyl imidazole ], 1, and 2-dimethyl imidazole was 92%.

[0025] After putting in and carrying out the nitrogen purge of the 2-methyl imidazole 41.1g (0.50 mols) to the autoclave made from stainless steel of 2200ml of examples, it heated at 160 degrees C. The reaction was continued, 49.6g (0.55 mols) of dimethyl carbonates having been dropped over 3 hours under the ordinary-pressure nitrogen

after the reaction end and the gas chromatography analyzed, the selectivity of 98% [ of the invert ratios of 2-methyl imidazole ], 1, and 2-dimethyl imidazole was 81%.

After putting in and carrying out the nitrogen purge of the 2-methyl imidazole 41.1g (0.50 mols) to the autoclave made from stainless steel of 3200ml of examples, it heated at 160 degrees C. In the place where temperature rose, 49.6g (0.55 mols) of dimethyl carbonates was dropped over 3 hours, and the reaction was continued among the reaction, having lowered \*\*\*\*\* and the pressure and agitating to a pan for 2 hours, when the pressure was set to 2. or more MPas. When it cooled to the room temperature after the reaction end and the gas chromatography analyzed, the selectivity of 83% [ of the invert ratios of 2-methyl imidazole ], 1, and 2-dimethyl imidazole was 80%.

[0026] After putting in and carrying out the nitrogen purge of the 2-methyl imidazole 41.1g (0.50 mols) to the three necked flask of 4200ml of examples, it heated at 120 degrees C. The reaction was continued, 49.6g (0.55 mols) of dimethyl carbonates having been dropped over 6 hours under the ordinary pressure and the nitrogen draft, and agitating to a pan after that in the place where temperature rose, for 2 hours. When it cooled to the room temperature after the reaction end and the gas chromatography analyzed, the selectivity of 85% [ of the invert ratios of 2-methyl imidazole ], 1, and 2-dimethyl imidazole was 91%.

[0027] The reaction was continued, having heated at 90 degrees C and agitating for 8 hours, after putting in and carrying out the nitrogen purge of 2-methyl imidazole 41.1g (0.50 mols) and the 49.6g (0.55 mols) of the dimethyl carbonates to the three necked flask of 300ml of the examples of a comparison. When it cooled to the room temperature after the reaction end and the gas chromatography analyzed, the selectivity of 25% [ of the invert ratios of 2-methyl imidazole ], 1, and 2-dimethyl imidazole was 94%.

[0028]

[Effect of the Invention] Since the target N-methyl imidazole derivatives are extremely obtained by the high yield as mentioned above according to this invention, without being able to use a dimethyl carbonate as a methylation agent on mild conditions, without using a catalyst, and generating the imidazolium compound of the 4th class, it is very useful on industry.

---

[Translation done.]

1/1 - (C) FILE CAPLUS

STN CA Caesar accession number : 1079

AN - 1997:436454 CAPLUS

DN - 127:50642

TI - Preparation of N-methylimidazole derivatives

IN - Kiso, Hiroyuki; Nagai, Yasuyuki; Hara, Yasushi

PA - Tosoh Corp., Japan

SO - Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 4 pp.

CODEN: JKXXAF

DT - Patent

LA - Japanese

FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PN	- JP9169737	A	19970630	JP 1995-333139	19951221 <--
PR	- JP 1995-333139			19951221	
OS	- MARPAT 127:50642				
AB	-	Claimed is a method for prepn. of N-methylimidazole derivs. by reactin imidazole derivs. with di-Me carbonate at 120 to 200.degree.. Di-Me carbonate 49.6 g (0.55 mol) was added over 6 h to 2-methylimidazole 41 (0.5 mol) at 160.degree. under nitrogen atm. Upon completion of addn. di-Me carbonate, the reaction was allowed to proceed for a further 2 h obtain 94% conversion of 2-methylimidazole and 92% selectivity for 1,2-dimethylimidazole. In a ref. example, the above reaction was carr out at 90.degree. for 8 h to obtain 25% conversion of 2-methylimidazol			

P.D. ....	.....
P. ....	1

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-169737

(43)公開日 平成9年(1997)6月30日

(51)Int.Cl.  
C 07 D 233/58  
233/68

識別記号

府内整理番号

F I

C 07 D 233/58  
233/68

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数5 O.L (全4頁)

(21)出願番号 特願平7-333139

(22)出願日 平成7年(1995)12月21日

(71)出願人 000003300  
東ソー株式会社  
山口県新南陽市開成町4560番地  
(72)発明者 木曾 浩之  
山口県新南陽市上迫町15-1  
(72)発明者 長井 康行  
山口県下松市桃山町133  
(72)発明者 原 康  
山口県新南陽市政所4丁目6番 6-404  
号

(54)【発明の名称】 N-メチルイミダゾール類の製造法

(57)【要約】

【課題】 炭酸ジメチルをメチル化剤として用いる従来の方法では、収率よく反応させるためには、触媒として炭酸カリウム及び高価なクラウンエーテルが不可欠であり、工業的な製造法としては適当ではなかった。

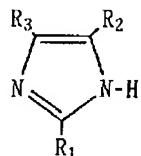
【解決方法】 イミダゾール類と炭酸ジメチルを反応させてN-メチルイミダゾール類を製造する際に、120～200°Cの温度範囲で反応を行う。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 イミダゾール類と炭酸ジメチルを反応させてN-メチルイミダゾール類を製造する際に、120～200℃の温度範囲で反応を行うことを特徴とするN-メチルイミダゾール類の製造法。

【請求項2】 イミダゾール類が下記一般式(1)で表されることを特徴とする請求項1に記載の方法。

## 【化1】



(R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub>は、互いに独立して水素原子、ハロゲン原子、又は脂肪族、芳香脂肪族、若しくは芳香族の基を意味する)

【請求項3】 常圧下、炭酸ジメチルを滴下しながら反応を実施することを特徴とする請求項1又は請求項2に記載の方法。

【請求項4】 反応を液相で実施することを特徴とする請求項1乃至請求項3のいずれかに記載の方法。

【請求項5】 炭酸ジメチルの量をイミダゾール類化合物に対してモル比0.7～2倍で反応を実施することを特徴とする請求項1乃至請求項4のいずれかに記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、N-メチルイミダゾール類の製造法に関する。

【0002】 一般に、イミダゾール類は、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂等の樹脂硬化剤、又は硬化促進剤として、あるいは各種農薬、医薬、又は染料中間体として極めて有用な化合物である。

## 【0003】

【従来の技術】 N-メチルイミダゾール類の製造法として、イミダゾール類とメタノールを酸触媒存在下で反応させる方法が知られている。しかしながら、この方法では、少なくとも200℃以上の温度が必要で、また多量の酸を使用するため装置の腐食が問題となる。また、反応終了後、これらの酸を中和するため、アルカリ処理が必要となり操作上面倒である。

【0004】 一方、比較的低い温度で行う方法として、イミダゾール類をメチルハライド又はジメチル硫酸等でメチル化する方法が知られている。しかしながら、この方法は、取扱いが面倒なハライド化合物又は毒性の強いジメチル硫酸を原料として使用しなければならず、また生成したN-メチルイミダゾールがさらに反応して4級塩であるイミダゾリウム化合物を生成することから、必ずしも收率よくN-メチルイミダゾールを合成することができなかったり、あるいは生成物の分離が困難である。

場合が多い。

【0005】 これらの問題を解決するために、安全性の高い炭酸ジメチルをメチル化剤として用いる方法が開発された。Synthesis, 382頁(1986)によれば、イミダゾール類と炭酸ジメチルを炭酸カリウム及びクラウンエーテル存在下、100℃、8時間反応を行うことにより目的のN-メチルイミダゾール類を85～91%の收率で合成している。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながらこの方法では、收率よく反応させるために、触媒として炭酸カリウム及び高価なクラウンエーテルが不可欠であり、工業的な製造法として適当ではなかった。

【0007】 本発明は上記の課題を鑑みてなされたものであり、その目的は、触媒を用いること無く、高收率で目的のN-メチルイミダゾール類を得ることのできる製造法を提供することである。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】 本発明者らは、N-メチルイミダゾール類の製造法について鋭意検討をした結果、イミダゾール類と炭酸ジメチルを反応させてN-メチルイミダゾール類を製造する際に、120～200℃の温度範囲で反応を行うことにより、触媒を用いること無く、また4級のイミダゾリウム化合物を生成することも無く、極めて高收率で目的物を得られることを見出し、N-メチルイミダゾール類の新規な工業的製造法として、本発明を完成するに至った。

【0009】 すなわち、本発明は、イミダゾール類と炭酸ジメチルを反応させてN-メチルイミダゾール類を製造する際に、120～200℃の温度範囲で反応を行うことを特徴とするN-メチルイミダゾール類の製造法である。

## 【0010】

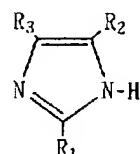
【発明の実施の形態】 以下に本発明を詳細に説明する。

【0011】 本発明の方法において、反応は120～200℃の温度範囲で行う。120℃未満では、反応が非常に遅くなるため実用的でなく、200℃を越える温度では、原料の分解が生じ、N-メチルイミダゾール類の收率が低下する。

【0012】 本発明の方法において使用される原料は、下記一般式(1)で表されるイミダゾール類

## 【0013】

## 【化2】



【0014】 (R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub>は、互いに独立して水素原子、ハロゲン原子、又は脂肪族、芳香脂肪族、若しく

は芳香族の基を意味する)と炭酸ジメチルである。

【0015】上記一般式(1)で表されるイミダゾール類としては、特に限定するものではないが、例えば、イミダゾール、2-メチルイミダゾール、4-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、4-エチルイミダゾール、2-プロピルイミダゾール、2-イソプロピルイミダゾール、2-ブチルイミダゾール、2-イソブチルイミダゾール、2-ペンチルイミダゾール、2-ヘキシルイミダゾール、2-オクチルイミダゾール、2-ドデシルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-アリルイミダゾール、2-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-( $\beta$ -ヒドロキシ)エチルイミダゾール、2-ベンジルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-シクロヘキシリミダゾール、2-シアノエチルイミダゾール、4-ニトロイミダゾール、4-フォルミルイミダゾール、4-シアノイミダゾール、4-シアノエチルイミダゾール、4-ヒドロキシメチルイミダゾール、4-アミノエチルイミダゾール、2,4-ジメチルイミダゾール、4,5-ジメチルイミダゾール、2,4-ジエチルイミダゾール、4,5-ジジエチルイミダゾール、2,4-ジフェニルイミダゾール、2,4-ジベンジルイミダゾール、2,4-ジシクロヘキシリミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-ブチル-4-メチルイミダゾール、2-メチル-4-フェニルイミダゾール、2-メチル-4-ニトロイミダゾール、2-メチル-4-フォルミルイミダゾール、2-フェニル-4-フォルミルイミダゾール、2-メチル-5-ニトロイミダゾール、2-メチル-5-フォルミルイミダゾール、2-フェニル-5-メチルイミダゾール、4-フェニル-5-メチルイミダゾール、2-メチル-5-フェニルイミダゾール、4-フェニル-5-メチルイミダゾールベニズイミダゾール、2-(2-ピリジル)イミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-エチルイミダゾール、4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、イミダゾール-4-カルボン酸、イミダゾール-4-ジチオカルボン酸、イミダゾール-4,5-ジカルボン酸、2-フェニル-4-メチル-5-エチルイミダゾール、2-プロピル-4-ベンジル-5-フェニルイミダゾール等が挙げられる。

【0016】本発明の方法において、使用される炭酸ジメチルの量は、イミダゾール類化合物に対してモル比0.7~2倍の範囲で反応を行うことが好ましい。0.7未満であると未反応のイミダゾール類が多く残るため実用的でなく、2を越えると生成したN-メチルイミダゾールが、さらにイミダゾリウム化合物へ4級塩化される反応が進行しやすくなるためN-メチルイミダゾール類の収率が低下する場合がある。

【0017】本発明の方法においては、副生成物及び着色防止を考慮して、不活性ガス、例えば、窒素ガス又は

アルゴンガスで反応器を置換して行うことが好ましい。

【0018】本発明の方法は、液相で実施する。

【0019】本発明の方法において、反応は、常圧下で行うことが好ましい。加圧下で反応を行った場合、4級化反応が進行し目的生成物を収率よく得ることは難しい。

【0020】本発明の方法は、炭酸ジメチルを滴下しながら反応させることが好ましい。本発明でいう滴下とは、例えば、ポンプを用いて試料を反応器に供給することあるいは、試料を上部から下部に落とすことをいう。滴下する速度は、反応温度によって決まり一概には決められないが、反応に消費される量に見合う速度で入れるのがよく、極端に過剰にならぬようすることが好ましい。極端に過剰になると、反応温度が炭酸ジメチルの沸点以上に保てなくなったり、炭酸ジメチルが系外に留出してくる。一方、炭酸ジメチルを一括に仕込んだ場合、反応温度を炭酸ジメチルの沸点より高く保つことができない。

【0021】本発明の方法において、溶媒は使用してもしなくてもさしつかえない。溶媒としては反応条件に不活性なものであれば特に制限はないが、原料であるイミダゾール類の沸点あるいは反応温度以上の沸点を有する溶媒を使用する方が好ましい。また、溶媒の用いる量については特に制限はない。

【0022】本発明の方法において、触媒を必要としないことが特徴であるが、触媒は使用してもさしつかえない。

### 【0023】

【実施例】以下、本発明の方法を実施例により説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

### 【0024】実施例1

200m1の三口フラスコに2-メチルイミダゾール41.1g(0.50モル)を入れ、窒素置換した後、160℃に加熱した。温度が上昇したところで、常圧、窒素気流下、炭酸ジメチル49.6g(0.55モル)を6時間かけて滴下し、その後、さらに2時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミダゾールの転化率94%，1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は92%であった。

### 【0025】実施例2

200m1のステンレス製オートクレーブに2-メチルイミダゾール41.1g(0.50モル)を入れ、窒素置換した後160℃に加熱した。温度が上昇したところで、常圧窒素気流下、炭酸ジメチル49.6g(0.55モル)を3時間かけて滴下し、さらに2時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミダゾールの転化率98%，1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は81%であった。

## 実施例3

200m1のステンレス製オートクレーブに2-メチルイミダゾール41.1g(0.50モル)を入れ、窒素置換した後、160℃に加熱した。温度が上昇したところで、炭酸ジメチル49.6g(0.55モル)を3時間かけて滴下し、反応中、圧力が2.5MPa以上になつたら脱圧し、圧力を下げ、さらに2時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミダゾールの転化率83%，1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は80%であった。

## 【0026】実施例4

200m1の三口フラスコに2-メチルイミダゾール41.1g(0.50モル)を入れ、窒素置換した後、120℃に加熱した。温度が上昇したところで、常圧、窒素気流下、炭酸ジメチル49.6g(0.55モル)を6時間かけて滴下し、その後、さらに2時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミ

ダゾールの転化率85%，1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は91%であった。

## 【0027】比較例

300m1の三口フラスコに2-メチルイミダゾール41.1g(0.50モル)及び炭酸ジメチル49.6g(0.55モル)を入れ、窒素置換した後、90℃に加熱し、8時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミダゾールの転化率25%，1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は94%であった。

## 【0028】

【発明の効果】以上のように本発明によれば、触媒を用いることなく温和な条件で炭酸ジメチルをメチル化剤として使用することができ、また4級のイミダゾリウム化合物を生成することなく極めて高収率で目的のN-メチルイミダゾール類が得られるので、工業上極めて有用である。